



PATENT
Customer No. 22,852
Attorney Docket No. 09354.0008-00

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Application of:)
)
Fumiyoshi IKKAI)
)
Application No.: 10/659,360) Group Art Unit: 1711
)
Filed: September 11, 2003) Examiner: Unassigned
)
For: METHOD OF PRODUCING)
SYNTHETIC POLYMER GEL AND)
SAID GEL)

CLAIM FOR PRIORITY

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

Under the provisions of Section 119 of 35 U.S.C., Applicant hereby claims the benefit of the filing date of Japanese Patent Application No. 2002-265123, filed September 11, 2002, for the above identified United States Patent Application.

In support of Applicant's claim for priority, filed herewith is one certified copy of Japanese Patent Application No. 2002-265123.

If any fees are due in connection with the filing of this paper, the Commissioner is authorized to charge our Deposit Account No. 06-0916.

Respectfully submitted,

FINNEGAN, HENDERSON, FARABOW,
GARRETT & DUNNER, L.L.P.

By:

Mark D. Sweet
Reg. No. 41,469

Dated: April 2, 2004

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 2 年 9 月 1 1 日
Date of Application:

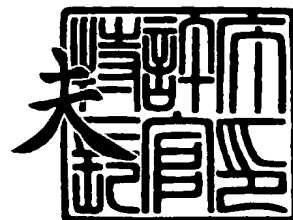
出 願 番 号 特 願 2 0 0 2 - 2 6 5 1 2 3
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 2 - 2 6 5 1 2 3]

出 願 人 ロ レ ア ル
Applicant(s):

2 0 0 3 年 9 月 5 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 3 - 3 0 7 3 1 7 0

【書類名】 特許願

【整理番号】 JP3487LOR

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 A61K 7/00
C08J 3/105
C08L101/14

【特許出願人】

【識別番号】 391023932

【氏名又は名称】 ロレアル

【代理人】

【識別番号】 100109726

【弁理士】

【氏名又は名称】 園田 吉隆

【選任した代理人】

【識別番号】 100101199

【弁理士】

【氏名又は名称】 小林 義教

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 058621

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 合成高分子ゲルの製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 過硫酸塩と、アクリロイル構造を有する少なくとも一種の水溶性ビニルモノマーとを含有する水溶液を調製し、次いで、当該水溶液に紫外線を照射してゲル化することを含む、合成高分子ゲルの製造方法。

【請求項 2】 水溶性ビニルモノマーが、下記式 (I)：



(式中、R は、OH、R₁ (R₁ は置換されていてもよい炭素数 1～10 の直鎖状又は分岐状又は環状のアルキル基又はアルコキシル基であり、任意に O、S 又は N のヘテロ原子を鎖中に含んでいてもよい)、OR₁、NH₂、NH-R₁、または N-R₁R₂ (但し、R₂ は R₁ と同じ意味を表す) から選択される任意の置換基を示す)

で表される構造を有することを特徴とする、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】 過硫酸塩が、過硫酸アンモニウム、過硫酸カリウム、過硫酸ナトリウムから選択されることを特徴とする、請求項 1 または 2 に記載の方法。

【請求項 4】 水溶性ビニルモノマーの濃度が 300～1200 mM であることを特徴とする、請求項 1 から 3 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 5】 過硫酸塩の濃度が 0.01～1.0 重量%であることを特徴とする、請求項 1 から 4 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 6】 紫外線の波長が UVC 領域であることを特徴とする、請求項 1 から 5 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 7】 紫外線の照射時間が 1～60 分間であることを特徴とする、請求項 1 から 6 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 8】 請求項 1 から 7 のいずれか一項に記載の方法で製造されうることを特徴とする合成高分子ゲル。

【請求項 9】 前記水溶液を調製した後、紫外線を照射する前に、当該水溶液を水と混和しない媒体中に分散させて懸濁物又は油中水型エマルジョンを形成することを更に含み、当該懸濁物又はエマルジョンに紫外線を照射することを特

徴とする、請求項 1 から 7 のいずれかに記載の方法。

【請求項 10】 請求項 9 に記載の方法で製造されうることを特徴とする合成高分子ゲル粒子の分散物。

【請求項 11】 前記懸濁物又はエマルジョンから、生成された合成高分子ゲル粒子を分離することを更に含むことを特徴とする、請求項 9 に記載の方法。

【請求項 12】 請求項 11 に記載の方法で製造されうることを特徴とする合成高分子ゲル粒子。

【請求項 13】 前記水溶液に顔料、フィラー及び／又は真珠光沢剤の粒子を添加し、その後、当該水溶液を水と混和しない媒体中に分散させて、中心に顔料、フィラー及び／又は真珠光沢剤の粒子を包含した水溶液粒子を含む懸濁物又は油中水型エマルジョンを形成し、当該懸濁物又はエマルジョンに紫外線を照射して、顔料、フィラー及び／又は真珠光沢剤の粒子からなるコアを包含する合成高分子ゲル粒子とすること更に含むことを特徴とする、請求項 1 から 7 のいずれかに記載の方法。

【請求項 14】 前記エマルジョンから、顔料、フィラー及び／又は真珠光沢剤の粒子からなるコアを包含する合成高分子ゲル粒子を分離することを更に含むことを特徴とする、請求項 13 に記載の方法。

【請求項 15】 請求項 14 に記載の方法によって製造されうることを特徴とする、顔料、フィラー及び／又は真珠光沢剤の粒子からなるコアを包含する合成高分子ゲル粒子。

【請求項 16】 請求項 8 に記載の合成高分子ゲル、請求項 10 に記載の合成高分子ゲル粒子の分散物、あるいは請求項 12 又は請求項 15 に記載の合成高分子ゲル粒子を含有することを特徴とする化粧品組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は合成高分子ゲルの製造方法に関する。特に、過硫酸塩と特定構造を有する水溶性ビニルモノマーとを含有する水溶液に紫外線を照射することにより極めて容易に水性ゲルを得ることのできる方法に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】

合成高分子ゲル、特に水性ゲル（あるいはハイドロゲル）は、その保水性や柔軟性、あるいは内包薬剤の徐放性といった性質に基づいて様々な機能を発揮するため、医療及び衛生分野、化粧品分野、食品分野、機械、建築、あるいは農業分野を含む種々の用途に使用されている。

【0003】

合成高分子からなる水性ゲルは、それを構成する合成高分子鎖が形成する不溶性の三次元網目構造を水が膨潤させたものと考えられている。この三次元網目構造においては、高分子鎖が互いに共有結合、水素結合、配位結合、クーロン力結合により結合したり、複数の高分子鎖が凝集あるいは絡み合っている。

特に、共有結合により架橋した合成高分子からなる水性ゲルは、その安定性が良好であるため、広い用途において使用可能である。このような共有結合による合成高分子ゲルの製造は、主に、（１）モノマーの重合と同時に架橋させる方法、及び（２）重合した高分子鎖間に架橋結合を生じさせる方法によっていた。

【0004】

重合反応は、開始反応、生長反応、連鎖移動反応、停止反応という素反応からなり、ラジカル重合における開始反応では、開始剤と呼ばれるラジカル発生化合物を使用するのが一般的である。

開始剤を添加したモノマー溶液に熱や光といったエネルギーを与えると、開始剤が解離してラジカルを発生し、当該ラジカルが（ビニル）モノマーの二重結合を攻撃してモノマーラジカルを生成し、生成されたモノマーラジカルが次のモノマーを攻撃する。この連鎖反応が次々に進行して高分子鎖が形成され、最終的に他の分子への連鎖移動反応や不均化等の停止反応により重合が停止する。

【0005】

重合溶液中に２種類以上のモノマーが存在する場合には、生長反応において異なる種類のモノマーが連鎖的に結合して共重合体が形成される。この場合、存在するモノマー間の反応性（共重合性）の相違により、高分子鎖を構成するモノマーの比率が相違したり、重合が十分に進行しなかったりする場合がある。

上記(1)の方法では、モノマー溶液にジビニル化合物等の架橋剤を添加し、モノマーの重合と同時に架橋反応を起こさせるのが一般的である。この場合も、望まれる架橋高分子を得るためには、使用するモノマーと架橋剤の反応性を調整することが必要になる。

【0006】

さらに、モノマー溶液を媒体中に分散させた乳化重合等では、媒体の温度を上げると界面のバランスが崩れて良好な分散状態が保てなくなる場合がある。よって、乳化重合においては、還元剤の存在下で分解する過酸化物を含む低温開始剤(レドックス開始剤)が使用されることが多い。

このレドックス開始剤は、過硫酸塩又は過酸化水素等の酸化剤と、水溶性の第一鉄塩や NaHSO_3 等の無機還元剤あるいはアルコールやポリアミン等の有機還元剤との組み合わせである。この開始剤を使用すると、還元剤から酸化剤への電子移動によりラジカルが発生し、当該ラジカルがモノマーの重合反応を開始させる。しかしながら、レドックス開始剤に含まれる還元剤がエマルジョンの形成に使用した界面活性剤に作用して乳化状態を保てなくなる場合もあった。

【0007】

一方、上記(2)の方法では、高分子鎖間で架橋反応をさせるため、高分子鎖に予め反応性の官能基を導入しておく必要があり、架橋後に残った未反応の官能基がゲルの性質に悪影響を与える危険性がある。また、官能基を導入しない場合には、 γ 線照射といった大規模な設備を必要とする処理をしなければならなかった。

従って、特に乳化重合において、乳化状態に悪影響を与えず、なおかつ簡便に架橋合成高分子を形成できるゲルの製造方法が求められていた。

【0008】

【課題を解決するための手段】

上記の課題は、以下の本発明により悉く解決される。即ち本発明は、過硫酸塩と、アクリロイル($\text{CH}_2=\text{CHCO}-$)構造を有する少なくとも一種の水溶性ビニルモノマーとを含有する水溶液を調製し、当該水溶液に紫外線を照射してゲル化することを含む、合成高分子ゲルの製造方法である。

本発明の方法を用いることにより、従来の合成高分子ゲルの製造に一般に使用されていた架橋剤やレドックス開始剤、並びに γ 線処理が不要になり、極めて簡便かつ安定に合成高分子ゲルを製造することができる。即ち本願発明の方法によれば、架橋剤やレドックス開始剤などの添加剤を含まない水溶液をゲル化することが可能であり、実質的に原料となるビニルモノマーから構成される高分子のみを含む純粋なハイドロゲルを得ることができる（但し、後述するように他の添加剤を含有することを否定するものではない）。

【0009】

【発明の実施の形態】

本発明の合成高分子水性ゲル（ハイドロゲル）の製造方法においては、まず始めに、開始剤として機能すると考えられる水溶性の化合物、特に過硫酸塩と、上記特定構造を有する水溶性ビニルモノマーとを含有する水溶液を調製する。

【0010】

使用されるビニルモノマーは、アクリロイル構造を具備し、なおかつ水溶性であれば特に限定されるものではないが、好ましくは、下記式(I)：



（式中、Rは、OH、R₁（R₁は炭素数1～10、好ましくは1～8、より好ましくは1～6、さらに好ましくは1～4の直鎖状又は分岐状又は環状のアルキル基又はアルコキシル基であり、任意に、例えばO、S又はNのヘテロ原子を鎖中に含んでいてもよく、例えばハロゲン原子、ヒドロキシル基、カルボキシル基、ホルミル基、及び／又はアミノ基等で置換されていてもよい）、OR₁、NH₂、NH-R₁、またはN-R₁R₂（但し、R₂はR₁と同じ意味を表す）から選択される任意の置換基を示す）

で表される構造を有するものが使用される。

【0011】

本明細書における「水溶性」とは、加熱しなくても（室温において）水に溶解することを意味する。

このような性質を持ち、本発明で好ましく使用されうる水溶性ビニルモノマーとしては、例えば、アクリル酸；アクリルアミド；N-イソプロピルアクリルア

ミド、N-ヘキシルアクリルアミド、N-エチルアクリルアミド、N-メチルアクリルアミド等のN-アルキルアクリルアミド；N,N-ジイソプロピルアクリルアミド、N,N-ジヘキシルアクリルアミド、N,N-ジエチルアクリルアミド、N,N-ジメチルアクリルアミド、N-メチル-N-エチルアクリルアミド、N-エチルN-ヘキシルアクリルアミド、4-アクリロイルモルホリン等のN,N-ジアルキルアクリルアミド；イソプロピルアクリレート、ヘキシルアクリレート、エチルアクリレート、2-(ジメチルアミノ)エチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルアクリレート等のアルキルアクリレートを含むアクリル酸エステルを挙げることができる。

【0012】

水溶性ビニルモノマーの濃度は、一般的には、ゲル化されるべき水溶液中で、300～1200mM、好ましくは500～1000mM、より好ましくは700～800mMである。しかしながら、重合系が溶液重合、懸濁重合又は乳化重合のいずれであるか、あるいは意図する重合度や架橋度（あるいはゲル化度）又は使用する過硫酸塩の濃度等の条件により上記範囲以外の濃度で使用してもよい。

【0013】

ここで調製される水溶液は、前記水溶性ビニルモノマーとともに、少なくとも一種の過硫酸塩を含有する。

使用する過硫酸塩は、過硫酸アンモニウム、過硫酸カリウム、過硫酸ナトリウム等から選択するのが好ましいが、これらに限定されない。過硫酸塩は、上述したレドックス開始剤として還元剤と組み合わせて使用されている物質である。しかしながら、本発明においては、還元剤は使用せずに、過硫酸塩を単独で使用する。この過硫酸塩は、後に紫外線を照射することにより開裂して重合開始剤として作用するものと考えている。本発明者等の知る限りにおいて、過硫酸塩の光特性に関して報告された例はない。過硫酸アンモニウムの波長200～370nmの紫外線領域における吸収スペクトルを図1に示す。

【0014】

この過硫酸塩は、水溶液中に、一般的には0.01～1.0重量%、好ましくは0.1～0.5重量%、より好ましくは0.2～0.3重量%の濃度で用いら

れる。但し、水溶性ビニルモノマーの濃度と同様に、条件あるいは用途等により、この範囲外の濃度とすることもできる。

【0 0 1 5】

特記すべきことは、本発明において、従来はレドックス開始剤を構成する酸化剤として使用されていた過硫酸塩を光（紫外線）による重合に使用していることである。従来から使用されている光重合開始剤は、ベンゾインエーテル類、アシルホスフィンオキシド類及びアシルホスホナート類等の光開裂してラジカルを生ずる化合物、及びベンゾフェノン類等の水素引き抜きや電子移動によってラジカルを生成する化合物であり、その殆どがベンゼン環構造を有する水不溶性の化合物であり、毒性や着色を有している場合があった。しかしながら、本発明で使用する過硫酸塩は極めて水溶性が高く、なおかつ安全で無色である。よって、合成高分子の水性ゲルを製造する場合に、過硫酸塩の濃度を広範囲で調節することができ、従って、ゲル化の速度や、高分子の分子量又は架橋度を容易に調節することが可能である。

【0 0 1 6】

上記の過硫酸塩と水溶性ビニルモノマーは、一般的には室温において水に溶解させることができる。

この水溶液は、過硫酸塩及び水溶性ビニルモノマー以外に、その用途等に応じて、任意の成分を含有していてもよいが、その任意成分が本発明の方法によるゲル化を阻害しないように留意すべきことは言うまでもない。

これらの任意成分の中で、顔料、真珠光沢剤、及び／又は後述するフィラーを特に挙げることができる。

【0 0 1 7】

調製された水溶液は、好ましくは石英等の紫外線透過性の容器内に入れ、水溶液に紫外線を照射する。

紫外線は、その波長によりUVA領域（波長320～400nm程度）、UVB領域（波長290～320nm程度）及びUVC領域（波長200～290nm程度）に分けられるが、本発明において好ましいのはUVC領域の紫外線、中でも波長が200～250nm程度の短波長の紫外線である。紫外線の照射時間

は、水溶液に含まれる過硫酸塩及び／又は水溶性ビニルモノマーの濃度や求められるゲル化度等により異なるが、一般的には1～60分間、好ましくは3～45分間、より好ましくは5～30分間である。

【0018】

以上の操作を施すことにより、容器中の水溶液において重合及び架橋反応が進行し、次第に流動性を喪失して水溶液全体がゲル化される。

このようにして製造された合成高分子ゲルは、架橋した合成高分子及び前記の任意成分以外に、例えば従来のレドックス開始剤に含まれていた還元剤といった不要な成分を含有していない。

【0019】

次に、本発明の方法の別の態様においては、上述の通りに、過硫酸塩及び水溶性ビニルモノマー、並びに上記の任意成分を含有する水溶液を調製する。次いで、当該溶液を、水と混和しない媒体、例えば、酢酸エチル、ジクロロメタン、石油エーテル、ベンゼン、キシレン等の有機溶媒、あるいは流動パラフィン、植物油、動物油、合成油、鉱物油等の油に分散させる。

【0020】

分散媒体としては、特に以下のものを挙げることができる：

- ・動物由来の炭化水素ベースの油、例えば、ペルヒドロスクアレン等；
- ・炭化水素ベースの植物油；
- ・鉱物又は合成由来の直鎖状又は分岐状炭化水素；
- ・脂肪酸の合成エステル及びエーテル；
- ・12～26の炭素原子を有する脂肪アルコール；
- ・これらの混合物。

【0021】

この操作は、上記媒体に水溶液を添加してホモジナイザー等により攪拌して懸濁させる操作、並びに、適当な界面活性剤（乳化剤）を使用して水溶液粒子を媒体中に乳化させて油中水型エマルジョンとする操作の両方を含むものとする。

用いる界面活性剤は、ソルビタン又はグリセロールのエステル；ソルビタン又はグリセロールのアルキルエステル又はアルキルエーテルであってよい。

【0022】

次いで、これらの懸濁物又はエマルジョンを、上記したように紫外線透過性の容器に入れ、同様に紫外線を照射する。

これにより、媒体中に分散された合成高分子ゲル粒子、好ましくは均一径を有する粒子を容易に得ることができる。

本発明の方法は、従来のレドックス開始剤の還元剤を使用しないため、乳化系のバランスを崩すこともなく、単に紫外線を照射するのみで分散された合成高分子ゲル粒子を製造することができる。

【0023】

生成された合成高分子ゲル粒子は、必要に応じて、当該分野で知られた方法に従って媒体から分離することができる。例えば、生成された合成高分子ゲル粒子を含む媒体に、ヘキサン等の揮発性有機溶媒を添加し、上澄み液を除去するという操作を繰り返し、最終的に自然乾燥や凍結乾燥により溶媒をとばすことにより合成高分子ゲル粒子を得ることができる。場合によっては、粒子が分散された媒体に遠心分離をかけて粒子を沈降させ、上澄み液を除去する方法も用いられる。また、特に粒径の大きな合成高分子ゲル粒子の場合、粒子が分散された媒体を粒径より小さな孔のメッシュ上に拡げて媒体を除去し、さらにヘキサン等で洗浄してもよい。

【0024】

例えば、中心に（コアとして）顔料、フィラー及び／又は真珠光沢剤の粒子を包含した形で媒体中に分散された（ビニルモノマー及び過硫酸塩）水溶液に本発明の方法を施して水溶液をゲル化し、当該ゲル化粒子を分離することにより、合成高分子ゲルで表面を保護された顔料、フィラー及び／又は真珠光沢剤の粒子を得ることができる。このように、フィラー及び／又は真珠光沢剤からなるコアと合成高分子ゲルからなるシェルを具備する被覆粒子は、特に化粧品などの分野で有用である。

【0025】

本明細書において、「顔料」という語は、組成物を着色及び／又は不透明化するための、白色又は着色の、無機又は有機粒子を意味すると解される。「フィラ

ー」という語は、組成物に実体又は硬さを与え、及び／又はメイクアップ結果に柔らかさ、マット効果及び均一性を与えるための、無色又は白色の、鉱物又は合成の、ラメラ又は非ラメラ粒子を意味すると解される。「真珠光沢剤」という語は、光を反射する虹色の粒子を意味すると解される。

【0026】

顔料は、白色又は着色の、無機及び／又は有機の、マイクロメーター又はナノメーターサイズのものですることができる。無機顔料として挙げられるものは、酸化チタン、酸化ジルコニウム又は酸化セリウム、及び酸化亜鉛、酸化鉄又は酸化クロム及びフェリック・ブルー(ferric blue)を含む。有機顔料として挙げられるものは、カーボンプラック、及びバリウム、ストロンチウム、カルシウム及びアルミレーキを含む。

【0027】

真珠光沢剤として考えられるものの中で、酸化チタン、酸化鉄、天然顔料又はビスマスオキシクロリドで被覆されたマイカ、及び着色されたマイカチタンが挙げられる。

フィラーは、無機又は有機の、ラメラ又は非ラメラのものですることができる。タルク、マイカ、シリカ、カオリン、ナイロンパウダー、ポリエチレンパウダー、ポリテトラフルオロエチレン、デンプン、マイカチタン、天然真珠、窒化ホウ素、Expancel(Nobel Industrie社)、Polytrap(Dow Corning社)等の微小球、及びシリコーン樹脂マイクロビーズ(例えば、東芝シリコーン社のトスパール)が挙げられる。

【0028】

合成高分子ゲル粒子及び／又は当該ゲルを含む分散物及び／又は当該ゲルで被覆された顔料は、化粧品組成物において特に有利に使用することができる。

これらは、組成物中に、意図する効果に応じて当業者により容易に決定される量で含まれるのが好ましく、一般的には組成物全重量に対して0.1～40重量%、例えば1～15重量%、より好ましくは4～12重量%、さらに好ましくは4～10重量%とすることができる。

【0029】

本発明の化粧品組成物は、少なくとも一種の化粧品的又は皮膚化学的に許容される油、室温（25℃）で液体である脂肪物質を含有することができる。これらの油は、炭化水素ベースの油及び／又はシリコン油及び／又はフルオロ油であってよい。それらは、動物、植物、鉱物、又は合成由来のものとすることができる。使用される油は、揮発性及び／又は不揮発性であってよい。

【0030】

特に、以下のものが挙げられる：

- ・動物由来の炭化水素ベースの油、例えば、ペルヒドロスクアレン等；
- ・炭化水素ベースの植物油、例えば、ヘプタン酸又はオクタン酸トリグリセリド等の4～10の炭素原子を有する脂肪酸の液状トリグリセリド；ヒマワリ油、トウモロコシ油、ダイズ油、インゲンマメ油、ブドウ種油、グラウンドナッツ油、スイートアーモンド油、ビューティーリーフ (beauty-leaf) 油、パーム油、ゴマ油、ヘーゼルナッツ油、アプリコット油、マカダミア油、ヒマシ油、アボカド油；カプリル酸／カプリン酸トリグリセリド、ホホバ油、カリテバター等；
- ・鉱物又は合成由来の直鎖状又は分岐状炭化水素、例えば、流動パラフィン及びその誘導体、石油ジェリー、ポリデセン、及びパーリーム (parleam) といった水素添加ポリペプチドイソブテン等；

【0031】

- ・特に脂肪酸の合成エステル及びエーテル、例えば、式 R_3COOR_4 で表され、 R_3 が7～29の炭素原子を有する高級脂肪酸残基であり R_4 が3～30の炭素原子を有する炭化水素ベースの鎖である油、例えば、パーセリン油（セトステアリルオクタノエート）、イソプロピルミリステート、2-エチルヘキシルパルミテート、2-オクチルドデシルステアレート、2-オクチルドデシルエルケート、イソステアリルイソステアレート；ヒドロキシル化エステル、例えば、イソステアリルラクテート、オクチルヒドロキシステアレート、オクチルドデシルヒドロキシステアレート、ジイソステアリルマレート、トリイソセチルシトレート、及び脂肪アルキルヘプタノエート、オクタノエート及びデカノエート；ポリオールエステル、例えばプロピレングリコールジオクタノエート、ネオペンチルグリコールジヘプタノエート又は次エチレングリコールジイソノナノエート；及びペ

ンタエリスリトールエステル；トリデシルトリメリテート等；

・ 12～26の炭素原子を有する脂肪アルコール、例えばオクチルドデカノール、2-ブチルオクタノール、2-ヘキシルドデカノール、2-ウンデシルペンタデカノール又はオレイルアルコール；

・ 部分的に炭化水素ベース及び／又はシリコーン含有のフルオロ油；

・ シリコーン油、例えば、揮発性又は不揮発性の、直鎖状又は環状のポリメチルシロキサン（PDMS）；アルキルジメチコーン；フェニルシリコーン油；及び

・ これらの混合物。

【0032】

また組成物は、少なくとも一種のワックスを含有してもよく、ワックスは、動物、植物又は鉱物由来の天然ワックス、例えば、モンタンワックス、カルナウバワックス、キャンデリラワックス、チャイナワックス、フラックスワックス、パインワックス、コットンワックス、オーリカー（ouricury）ワックス、褐炭ワックス、コメヌカワックス、サトウキビワックス、モクロウ又はコルクファイバーワックス等；パラフィンワックス、マイクロクリスタリンワックス、ラノリンワックス、オゾケライト、約40℃以上の融点を持つ水素添加油、例えば水素添加ホホバ油、エチレンの重合から誘導されるポリエチレンワックス、フィッシャー-トロプシュ合成により得られるワックス、約40℃以上の融点を持つ脂肪酸エステル及びグリセリド；シリコーンワックスであってよい。

【0033】

本発明の組成物は、さらに想定される用途において通常用いられる1又は複数の成分を含有することができ、それらは以下を含む：

・ 特に、ケトン、アルコール；グリコール；プロピレングリコールエーテル；短鎖エステル（全体で3～8の炭素原子を含む）；エーテル；アルカン；

・ 水、これは単独でも、保湿剤及び／又は親水性ゲル化剤などの親水性活性剤と混合したものでもよい；

・ 界面活性剤；

・ ポリマー、これは皮膜形成性でもそうでなくてもよい；

・ 化粧品組成物で通常使用されている親油性染料、親水性染料、顔料及び真珠光

沢剤、及びそれらの組合せから選択される色素；

・化粧品で通常使用されている添加剤、例えば、酸化防止剤、香料、精油、防腐剤、化粧的活性剤、ビタミン、必須脂肪酸、スフィンゴ脂質、D H A等の自己日焼け化合物、サンスクリーン剤。

【 0 0 3 4 】

本発明の組成物は、顔面及び身体の皮膚、粘膜及び／又は爪、睫毛又は毛髪等のケラチン繊維への適用を意図するものである。

これらは、想定されうる化粧品形態、例えば、任意に水を含含有していてもよい固体又は柔軟な油性ゲル；固体又はゲル化した水中油型、油中水型又は多重エマルション；水中油型ディスパーション；多相系、特に2相系とすることができる。それらは、クリーム、軟膏(salve)、ソフトペースト、軟膏剤(ointment)、キャスト又はモールドされた固体、特にスティックの外観を有することができる。それらは特に、スティック又はディッシュの形態；特に透明な無水の硬質ゲルの形態、中でも特に半透明又は透明な無水スティックの形態とすることができる。

【 0 0 3 5 】

これらの組成物は、特に身体用衛生組成物、例えばデオドラントスティックの形態として；毛髪用組成物、例えば毛髪用のスタイリングスティック又はメイクアップスティックの形態として；顔面又は身体の皮膚用又は粘膜用のメイクアップ組成物、例えば口紅、スティック又はディッシュとしてキャストされたファンデーション、フェースパウダー、アイシャドウ、従来の口紅に上塗りする固定ベース、コンシーラースティック、リップグロス、アイライナー、マスカラ又は一時的なタトゥー製品として；皮膚又は粘膜のケア用組成物、例えばリップケアバーム又はベース、身体用軟膏又はデイリーケアクリームの形態として；抗日光組成物又は自己日焼け組成物として；スキンケア組成物、例えばクリーム又は洗顔ゲルとしての用途が見出される。

【 0 0 3 6 】

【実施例】

以下に、具体例を挙げて本発明を更に詳細に説明する。

(実施例 1 ～ 7 及び比較例 1 ～ 7)

表 1 に記載した各水溶性ビニルモノマー 700～800 mM と、過硫酸アンモニウム 0.2～0.3 重量% とを含有する水溶液を調製した。

使用した水溶性ビニルモノマーは、下記式 (I I) で表される構造を有する。



【0037】

【表 1】

実施例	水溶性ビニルモノマー	式 (I I) における		ゲル化
		R _a	R _b	
実施例 1	アクリル酸	H	COOH	○
実施例 2	アクリルアミド	H	CONH ₂	○
実施例 3	N-イソプロピル アクリルアミド	H	CONHC ₃ H ₇	○
実施例 4	2-(ジメチルアミノ) エチルアクリレート	H	COO(CH ₂) ₂ N(CH ₃) ₂	○
実施例 5	N,N-ジメチル アクリルアミド	H	CON(CH ₃) ₂	○
実施例 6	4-アクリロイル モルホリン	H		○
実施例 7	2-ヒドロキシエチル アクリレート	H	COO(CH ₂) ₂ OH	○
比較例 1	メタクリル酸	CH ₃	COOH	×
比較例 2	メタクリルアミド	CH ₃	CONH ₂	×
比較例 3	N-ビニルアセトアミド	H	NHCOCH ₃	×
比較例 4	ビニル酢酸	H	CH ₂ COOH	×
比較例 5	N-ビニルホルムアミド	H	NHCOH	×
比較例 6	N-ビニルイミダゾール	H		×
比較例 7	p-スチレンスルホン酸 ナトリウム	H		×

【0038】

各水溶液 1 ml を、厚さ 4 mm×幅 1 mm の石英セルに入れ、約 20 cm の距

離から 5 0 0 W の水銀ランプの紫外線を 5 ～ 3 0 分間照射した。

実施例 1 ～ 7 の水溶液は、紫外線照射後に石英セルを傾けても流動することはなかったのに対し、比較例 1 ～ 7 の水溶液は、紫外線照射後も流動性を維持していた。これらの結果を、流動性を失ったものを○、流動性を維持したものを×として表 1 に記載した。

【 0 0 3 9 】

本実施例におけるゲル化（流動性喪失）は、モノマー水溶液を入れて紫外線照射した石英セルを約 1 8 0 ° 傾けた（上下反転させた）場合に、数分間のオーダーで石英セル中の物質が実質的に動かない場合、ゲル化した（流動性を失った）と判断し、液体のように流れ落ちた場合にはゲル化していない（流動性を維持している）と判断した。即ち、この実施例では、所謂ソフトゲルや粘性流体と呼ばれる変形可能な物質をゲルとは判断しない厳しい基準を採用した。しかしながら、一般にゲルと呼ばれるソフトゲル等の変形可能なゲルも本願発明の方法で製造できることは言うまでもなく、そのようなゲルも本発明の範囲に含まれる。

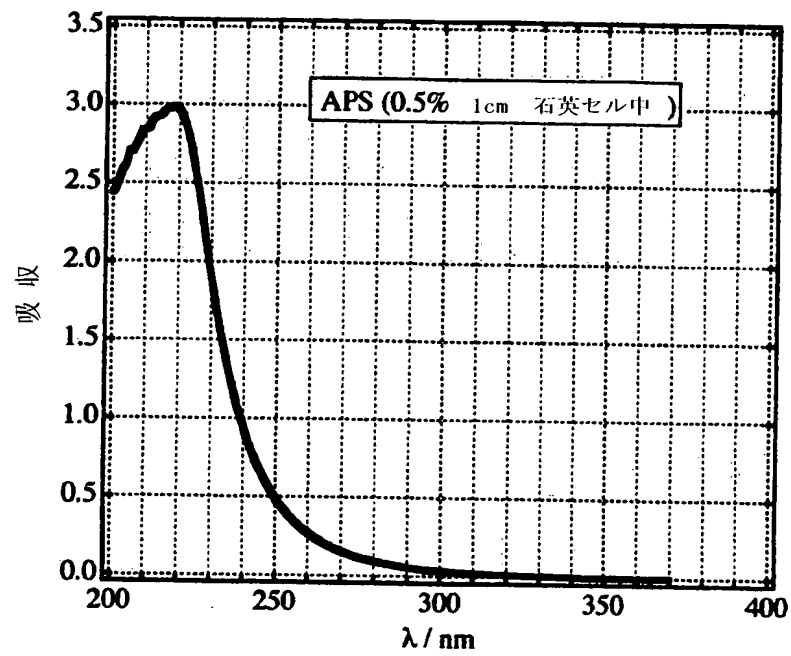
なお、波長 2 5 0 n m 以下の紫外線を遮断するフィルターを通して同条件で照射した場合には、実施例 1 ～ 7 の水溶液も流動性を保ったままであった（ゲル化が起こらなかった）。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 過硫酸アンモニウム（A P S）の紫外線（波長 2 0 0 ～ 3 7 0）における吸収スペクトルを示すグラフである。

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 従来のゲル化で使用していた架橋剤や低温レドックス開始剤の還元剤を使用せず、例えば乳化重合において乳化状態に悪影響を与えず、なおかつ簡便に架橋合成高分子を形成できる水性ゲルの製造方法を提供する。

【解決手段】 過硫酸塩と、アクリロイル構造を有する化合物から選択される少なくとも一種の水溶性ビニルモノマーとを含有する水溶液を調製し、次いで、当該水溶液に紫外線を照射することを含むことを特徴とする合成高分子ゲルの製造方法。前記水溶液が水と混和しない媒体に乳化されたエマルジョンを調製することを更に含む前記方法。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 2 - 2 6 5 1 2 3
受付番号	5 0 2 0 1 3 5 8 2 0 8
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0 0 9 4
作成日	平成 1 4 年 1 0 月 1 8 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成14年 9月11日
-------	-------------

次頁無

【書類名】 手続補正書

【整理番号】 JP3487LOR

【あて先】 特許庁長官 殿

【事件の表示】

【出願番号】 特願2002-265123

【補正をする者】

【識別番号】 391023932

【氏名又は名称】 ロレアル

【代理人】

【識別番号】 100109726

【弁理士】

【氏名又は名称】 園田 吉隆

【手続補正 1】

【補正対象書類名】 特許願

【補正対象項目名】 発明者

【補正方法】 追加

【補正の内容】

【発明者】

【住所又は居所】 茨城県つくば市東光台 5 - 5 ロレアル筑波センター

【氏名】 一階 文良

【プルーフの要否】 要

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 2 - 2 6 5 1 2 3
受付番号	5 0 2 0 1 5 1 1 9 6 4
書類名	手続補正書
担当官	藤居 建次 1 4 0 9
作成日	平成 1 4 年 1 0 月 1 8 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成14年10月 8日
【補正をする者】	
【識別番号】	391023932
【住所又は居所】	フランス国パリ, リュ ロワイヤル 1 4
【氏名又は名称】	ロレアル
【代理人】	申請人
【識別番号】	100109726
【住所又は居所】	東京都新宿区西新宿 2 丁目 6 番 1 号 新宿住友ビ ル 4 3 階 園田・小林特許事務所
【氏名又は名称】	園田 吉隆

次頁無

特願 2 0 0 2 - 2 6 5 1 2 3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[3 9 1 0 2 3 9 3 2]

1. 変更年月日

1 9 9 1 年 2 月 1 3 日

[変更理由]

新規登録

住 所

フランス国パリ, リュ ロワイヤル 1 4

氏 名

ロレアル